

# Pengaruh Doping Strontium pada Lapisan Tipis $\text{BaZr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$

D. F. Saputri\* dan S. Hadiati

Pasca Sarjana, Ilmu Fisika, Universitas Sebelas Maret (UNS)  
Jl. Ir. Sutami 36A Ketingan 36A, Surakarta 57126 dan  
Program Studi Pendidikan Fisika, STKIP PGRI Pontianak 78116

A.H. Ramelan dan Y. Iriani

Pasca Sarjana, Ilmu Fisika, Universitas Sebelas Maret (UNS)  
Jl. Ir. Sutami 36A Ketingan 36A, Surakarta 57126

V. Inda Variani

Jurusan Fisika FMIPA Universitas Haluoleo, Kendari 93232

## Intisari

Lapisan tipis Barium Zirkonium Titanat ( $\text{BaZr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$ / BZT) didoping strontium (Sr) 1% dan 3% telah berhasil ditumbuhkan di atas substrat Pt/Si. Lapisan tipis dideposisi menggunakan metode *Chemical Solution Deposition* (CSD) yang disiapkan dengan *spin coater* dengan kecepatan putar 4000 rpm dan suhu annealingnya 800°C. Hasil karakterisasi XRD menunjukkan adanya puncak-puncak milik BZT dan terjadi pergeseran puncak setelah didoping Sr. *Refinement* dengan analisis *Rietveld* menggunakan program GSAS dilakukan untuk menunjukan doping Sr telah masuk dalam senyawa BZT dan hasil analisisnya menunjukkan parameter kisi semakin besar seiring bertambahnya Sr. Hasil karakterisasi dari SEM menunjukkan permukaan lapisan tipis BSZT telah rata di atas substrat Pt/Si dan seiring penambahan Sr ukuran butirnya semakin kecil.

## ABSTRACT

A thin layer of Barium Zirconium Titanate ( $\text{BaZr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$ ) doped strontium (Sr) 1% and 3% have been successfully grown on a substrate Pt/Si. A thin layer deposited using Chemical Solution Deposition (CSD) were prepared by spin coater with a rotational speed of 4000 rpm and a annealing temperature of 800°C. The XRD characterization results indicate peaks belonging BZT and a shift in the peak after doped Sr. Refinement by the Rietveld analysis using GSAS program shows that Sr atoms were incorporated in BZT and the results of the analysis showed the lattice parameter increase with increasing Sr. The results indicate SEM characterization of thin film surface BSZT has been deposited on the substrate Pt/Si and as the Sr concentration increases, the grain size decreases.

KATA KUNCI: Rietveld analysis, BZT, doping Sr, grain size

## I. PENDAHULUAN

Seiring dengan perkembangan zaman, Barium Titanat ( $\text{BaTiO}_3$ ) merupakan material ferroelektrik yang sering digunakan untuk aplikasi di bidang elektronik.  $\text{BaTiO}_3$ , merupakan material ferroelektrik oksida dengan struktur perovskite  $\text{ABO}_3$  dan digunakan sebagai kapasitor karena mempunyai konstanta dielektrik tinggi. Untuk meningkatkan konstanta dielektrik dan untuk mengurangi kehilangan dielektrik pada frekuensi rendah, maka ditambahkan Stronsium (Sr) atau Zirkonium (Zr) [1].

Barium Strontium Titanat (BST) adalah material yang memiliki karakteristik konstanta dielektrik yang tinggi, kebocoran arus rendah [2]. Karakteristik sifat kelistrikan dan mate-

rial (mikrostruktur) dari lapisan tipis BST banyak dipengaruhi oleh metode penumbuhan lapisan tipis, jenis material doping, suhu annealing, dan ukuran *grain* [3]. Pada penelitian yang dilakukan Gracia *et al.* (2002) karakteristik BST seperti sifat dielektrik dan sifat ferroelektrik (polarisasi) berubah setelah dilakukan doping pada material tersebut [4].

Barium Zirkonium Titanat (BZT) adalah material yang menggantikan BST karena  $\text{Zr}^{4+}$  mempunyai sifat kimia yang lebih stabil daripada  $\text{Ti}^{4+}$  dan mempunyai ukuran ion yang lebih besar untuk memperluas kisi perovskite [1]. Selain itu jari-jari  $\text{Zr}^{4+}$  sebesar 0,087 nm yang lebih besar dibandingkan jari-jari  $\text{Ti}^{4+}$  yaitu sebesar 0,068 nm [5]. Lapisan tipis BZT yang mempunyai struktur butir yang halus dan padat akan memiliki sifat dielektrik yang baik [6]. Dilihat dari karakteristik yang dimiliki lapisan tipis BST dan BZT, untuk itu dilakukan modifikasi penumbuhan lapisan tipis BSZT. Pada lapisan tipis  $\text{Ba}_{1-y}\text{Sr}_y\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$  (BSZT),  $\text{Sr}^{2+}$  menggantikan  $\text{Ba}^{2+}$  yang mempunyai muatan ion sama dan jari-jari

\*E-MAIL: [yopen.2005@yahoo.com](mailto:yopen.2005@yahoo.com)

atom yang hampir sama.

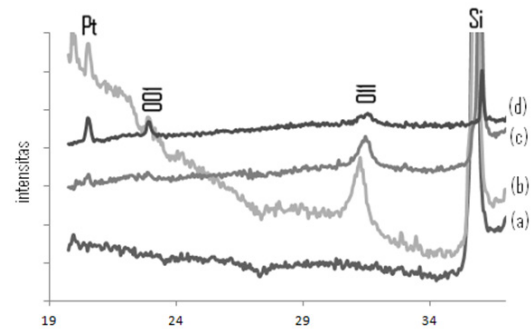
Beberapa metode yang dapat digunakan dalam penumbuhan lapisan tipis antara lain dengan cara *sputtering*, *metal organic chemical vapour deposition* (MOCVD) dan metode *Chemical Solution Deposition* (CSD) [7]. Pada penelitian ini dilakukan penumbuhan lapisan tipis Barium Zirkonium Titanat ( $\text{BaZr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$ ) didoping strontium (Sr) menggunakan metode CSD. Metode ini dipilih karena lebih mudah, tidak memerlukan biaya yang mahal dan dapat mengontrol stoikiometri dengan baik. Tahapan dalam metode ini yaitu pertama pembuatan larutan kemudian deposisi menggunakan *spin coater* dan yang terakhir proses annealing. Pada penelitian ini penumbuhan lapisan tipis BZT doping strontium (Sr) dilakukan di atas substrat Pt/Si dengan variasi mol dopan Sr yaitu: 1% dan 3%. Sampel kemudian dikarakterisasi menggunakan peralatan *X-Ray Diffraction* (XRD) untuk mengetahui struktur kristal dan dilakukan penghalusan menggunakan analisis *Rietveld*. Struktur mikro dan ketebalan dari sampel akan dikarakterisasi juga menggunakan *Scanning Electron Microscopy* (SEM).

## II. METODE PENELITIAN

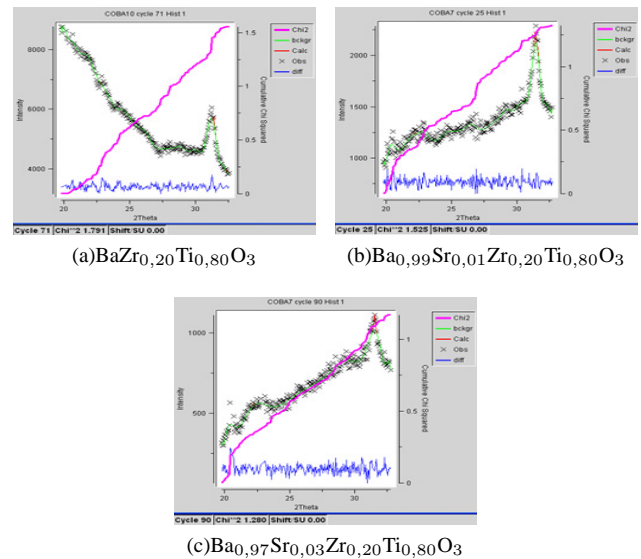
Bahan-bahan yang digunakan dalam pembuatan larutan BZT doping Sr yaitu barium asetat [ $\text{Ba}(\text{CH}_3\text{COO})_2$ ], zirkonium butoxide [ $\text{Zr}(\text{O}(\text{CH}_2)_3(\text{CH}_3)_4$ ), titanium isopropoksida [ $\text{Ti}(\text{C}_12\text{O}_4\text{H}_{28})$ ], dan strontium asetat [ $\text{Ba}(\text{CH}_3\text{COO})_2$ ], serta asam asetat dan ethylene glycol yang digunakan sebagai pelarutnya. Substrat yang digunakan adalah Pt/Si. Metode penumbuhan lapisan tipis yang digunakan adalah metode CSD. Pada metode ini ada tiga tahapan penting dalam pembuatan lapisan tipis, yaitu pembuatan larutan (proses kimia), penumbuhan lapisan tipis menggunakan *spin coater* dan proses annealing menggunakan furnace (proses termal). Pada proses pembuatan larutan semua bahan dicampur menggunakan *magnetic stirrer*. Pembuatan lapisan tipis BZT dan BZT yang didoping Sr dilakukan menggunakan *spin coater* dengan jumlah lapis 5 lapis. Sampel kemudian di-annealing menggunakan furnace dengan suhu  $800^\circ\text{C}$  dan waktu tahan 3 jam. Selanjutnya sampel dikarakterisasi menggunakan XRD merk Bruker tipe D8 Advance dengan anode Cu yang panjang gelombang  $0,15406\text{ nm}$  untuk melihat struktur Kristal, dan dihaluskan menggunakan analisis *Rietveld* dengan program *General Structure Analysis System* (GSAS). Uji morfologi lapisan tipis yang terbentuk di atas substrat Pt/Si juga dilakukan menggunakan SEM merk JEOL.

## III. HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil karakterisasi menggunakan peralatan XRD didapatkan grafik hubungan antara sudut difraksi dan intensitas. Gambar 1 menampilkan puncak-puncak yang diduga milik BZT dan BSZT di bidang 001 dan 011. Hal ini menunjukkan bahwa sampel BZT dan BSZT yang dibuat adalah kristal. Dari Gambar 1 terlihat adanya pergeseran puncak-puncak seiring penambahan Sr. Berdasarkan Tabel 1 dapat



Gambar 1: Pola XRD lapisan tipis, (a) Pt, (b)  $\text{BaZr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$ , (c)  $\text{Ba}_{0,99}\text{Sr}_{0,01}\text{Zr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$ , (d)  $\text{Ba}_{0,97}\text{Sr}_{0,03}\text{Zr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$



Gambar 2: Hasil refinement dengan GSAS (untuk interpretasi warna, pembaca dapat melihat artikel ini versi web)

diketahui bahwa seiring pertambahan doping Sr, sudut theta semakin besar pada orientasi bidang 011, dengan kata lain bergeser ke kanan. Tanpa penambahan Sr, pada puncak (011) nilai  $2\theta$  adalah  $31,26^\circ$  dengan penambahan Sr, pada puncak (011) sudut  $2\theta$  semakin besar yaitu  $31,46^\circ$ .

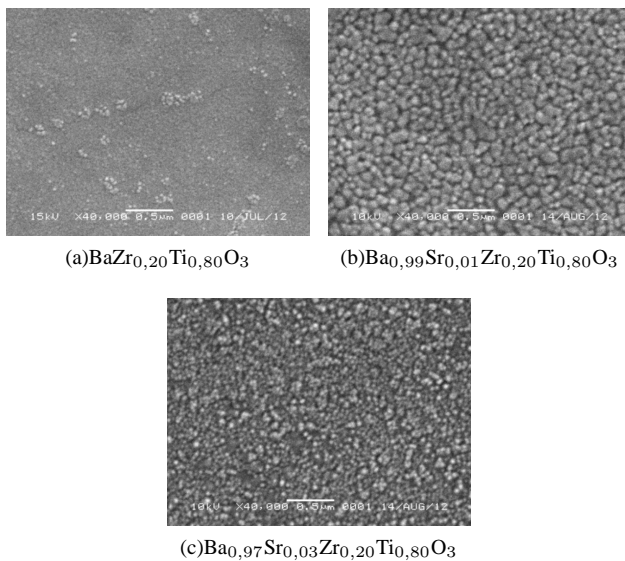
Untuk mengetahui dugaan puncak-puncak milik sampel yang diinginkan dilakukan refinement menggunakan analisis *Rietveld* dengan program GSAS. Metode ini adalah metode pencocokan pola hasil XRD data raw dengan hasil refinement program GSAS. Gambar 2 adalah hasil refinement untuk lapisan tipis BZT dan BZT yang didoping 1% dan 3% mol Sr. Gambar 2 menunjukkan doping Sr telah masuk dalam senyawa BZT, karena dalam pengolahan data menggunakan data GSAS *occupancy* yang dimasukkan di dalam atom-atom penyusun lapisan tipis BSZT sudah sesuai yaitu Ba, Zr, Ti, Sr dan  $\text{O}_3$ . Garis warna merah (untuk interpretasi warna, pembaca dapat melihat artikel ini versi web) menunjukkan kalkulasi hasil penghalusan menggunakan program GSAS, garis warna biru menunjukkan perbedaan antara hasil observasi (data raw dari XRD) dengan hasil refinement GSAS.

TABEL I: Sudut Difraksi Lapisan Tipis  $\text{BaZr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$  Variasi Doping Sr.

Orientasi Bidang	Sudut Difraksi		
	$\text{BaZr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$	$\text{Ba}_{0,99}\text{Sr}_{0,01}\text{Zr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$	$\text{Ba}_{0,97}\text{Sr}_{0,03}\text{Zr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$
001	22,91	22,86	22,91
011	31,26	31,46	31,46

TABEL II: Parameter kisi dari lapisan tipis BSZT.

Sampel	Parameter Kisi (Å)		
	a	c	c/a
$\text{BaZr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$	3,9109	4,1607	1,0638
$\text{Ba}_{0,99}\text{Sr}_{0,01}\text{Zr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$	4,0008	4,0549	1,0135
$\text{Ba}_{0,97}\text{Sr}_{0,03}\text{Zr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$	4,0031	4,0026	0,9998

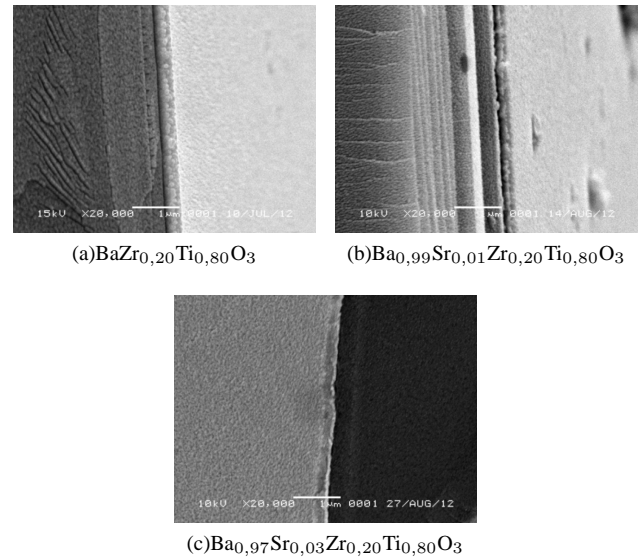


Gambar 3: Hasil SEM dari lapisan tipis

Semakin linear garis warna biru maka hasil observasinya semakin mendekati hasil instrument. Garis warna merah muda menunjukkan nilai *least square*-nya ( $\chi^2$ ), semakin linear nilai  $\chi^2$  maka data hasil observasi semakin normal.

Selain itu juga melalui analisis *Rietveld* didapat nilai parameter kisi hasil penghalusan. Tabel 2 merupakan parameter kisi hasil penghalusan GSAS. Nampak bahwa parameter kisinya semakin besar seiring penambahan Sr. Jari-jari  $\text{Ba}^{2+}$  0,161 nm lebih besar dibandingkan jari-jari  $\text{Sr}^{2+}$  0,144 nm, ion  $\text{Sr}^{2+}$  menggantikan ion  $\text{Ba}^{2+}$ , oleh sebab itu parameter kisinya semakin besar. Selain itu juga dapat diketahui nilai  $a \neq c$ , maka lapisan tipis BSZT memiliki struktur tetragonal.

Morfologi dari lapisan tipis BZT doping Sr ditunjukkan Gambar 3. Pada lapisan tipis  $\text{BaZr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$  batas butir tidak terlihat sehingga tidak dapat ditentukan ukuran butirnya. Pada lapisan tipis  $\text{Ba}_{0,99}\text{Sr}_{0,01}\text{Zr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$  (Gambar 3(b)) terlihat jelas batas butirnya, sehingga ukuran butirnya dapat dihitung yaitu sekitar 100 nm. Pada lapisan



Gambar 4: Tampang lintang lapisan tipis

tipis  $\text{Ba}_{0,97}\text{Sr}_{0,03}\text{Zr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$  morfologi lapisan tipis sudah terlihat merata akan tetapi batas butirnya tidak terlihat dengan jelas sehingga tidak dapat diukur ukuran butirnya. Ukuran butir sampel ini lebih kecil jika dibandingkan dengan lapisan tipis BZT doping 1% mol Sr.

Ketebalan lapisan tipis hasil foto SEM seperti diperlihatkan pada Gambar 4. Ketebalan lapisan tipis  $\text{BaZr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$  sekitar 230 nm. Setelah didoping 1% dan 3% mol Sr ketebalannya tidak jauh berbeda, oleh sebab itu dapat diketahui bahwa tidak ada pengaruh ketebalan lapisan tipis  $\text{BaZr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$  seiring penambahan Sr.

#### IV. SIMPULAN

Lapisan tipis Barium Zirconium Titanat ( $\text{BaZr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$ ) yang didoping strontium (Sr) telah berhasil ditumbuhkan di atas substrat Pt/Si. Adapun pengaruh doping Sr terhadap struktur kristal lapisan tipis Barium Zirconium Titanat ( $\text{BaZr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$ ) memperbesar sudut  $2\theta$ , dan nilai parameter kisinya semakin besar seiring penambahan doping Sr. Hasil morfologi lapisan tipis Barium Zirconium Titanat ( $\text{BaZr}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$ ) yang didoping Sr, lapisan tipis sudah terlihat merata dan tidak ada pengaruh terhadap ketebalannya seiring penambahan Sr.

### Ucapan Terima Kasih

Penulis mengucapkan terima kasih kepada DIKTI-Kementerian Pendidikan dan Kebudayaan, atas pendanaan

sebagian penelitian ini yang berasal dari Hibah DIPA BLU UNS dalam Hibah Penelitian Tim Pascasarjana dengan nomer kontrak No: 2341/ UN27.10/PG/2012.

- 
- [1] Gao, *et al.*, Tongji University, China, **74**, 147-153 (2005).
  - [2] Irzaman, *Studi Fotodiode Film Tipis Semikonduktor Ba<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>TiO<sub>3</sub> Didadah Tantalum*, Jurnal Sains Materi Indonesia, **10**(1), 18-22 (2007).
  - [3] T. Gon, *et al.*, Journal of the Korean Physical Society, **49**, December, S571-S574 (2006).
  - [4] Gracia, *et al.*, Ferroelectrics, **268**, 301-307 (2002).
  - [5] J. Zhai, *et al.*, Journal Ceramics International, **30**, 1237-1240 (2004).
  - [6] H.W. Chen, *et al.*, Journal of Material Sciences-Material in Electronics, **19**(4), 379-382 (2008).
  - [7] I. Yofentina, *dkk.*, *Pengaruh Heating Rate dan Jumlah Lapisan Terhadap Sifat Listrik (Kurva Histerisis) pada Lapisan Tipis Barium Strontium Titanat*, Jurnal Sains Materi Indonesia, Edisi Desember, 205-208 (2008).